

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-322531

(43)公開日 平成11年(1999)11月24日

(51)Int.Cl.⁶
A 6 1 K 7/00

識別記号

F I
A 6 1 K 7/00

J

審査請求 有 請求項の数48 O L (全 15 頁)

(21)出願番号 特願平11-113162

(22)出願日 平成11年(1999)4月21日

(31)優先権主張番号 9 8 0 4 9 5 0

(32)優先日 1998年4月21日

(33)優先権主張国 フランス (F R)

(71)出願人 391023932

ロレアル

L O R E A L

フランス国パリ, リュ ロワイヤル 14

(72)発明者 ジャン モンデ

フランス国 F-93600 オネー スー

ボア, リュ ロジェ ルメール, 90

(74)代理人 弁理士 園田 吉隆 (外1名)

(54)【発明の名称】 調節された結晶度のオレフィンコポリマーを含有する局所適用用組成物と該コポリマーの用途

(57)【要約】

【課題】 耐水性と非常に好ましい適用感があり、非常に良好な保持力を有する皮膜が得られる組成物を提供する。

【解決手段】 液状脂肪相と該液状脂肪相に溶解又は分散可能な少なくとも1種のコポリマーを有効量含有してなるケラチン物質に適用される組成物において、該コポリマーとして、50%以下、好ましくは5~40%、更に好ましくは10~35%の結晶度を有する結晶性オレフィンコポリマーを使用する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 液状脂肪相と該液状脂肪相に溶解又は分散可能な少なくとも1種のコポリマーを有効量含有してなるケラチン物質に適用される組成物において、該コポリマーが50%以下、好ましくは5~40%、更に好ましくは10~35%の結晶度を有する結晶性オレフィンコポリマーから選択されることを特徴とする組成物。

【請求項2】 上記コポリマーが組成物の全重量に対して少なくとも2重量%であることを特徴とする請求項1に記載の組成物。

【請求項3】 上記コポリマーが、 $M_w \geq 30000$ 、好ましくは $M_w \geq 40000$ となる重量平均分子量 M_w を有していることを特徴とする請求項1又は2に記載の組成物。

【請求項4】 上記コポリマーが、 $M_w/M_n \leq 3.5$ 、好ましくは $M_w/M_n \leq 2.5$ （ここで M_n は数平均分子量）の多分散指数 M_w/M_n を有することを特徴とする請求項3に記載の組成物。

【請求項5】 上記コポリマーが室温で固体であることを特徴とする請求項1ないし4の何れか1項に記載の組成物。

【請求項6】 化粧品用、皮膚用、衛生用又は製薬用液状脂肪相と少なくとも1種の固体状の口吻とを含有する成型製品の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし5の何れか1項に記載の組成物。

【請求項7】 上記コポリマーが皮膜形成可能なものであることを特徴とする請求項1ないし6の何れか1項に記載の組成物。

【請求項8】 液状脂肪相が揮発性であることを特徴とする請求項7に記載の組成物。

【請求項9】 化粧品用、皮膚用、衛生用又は製薬用活性成分及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の活性成分を更に含有していることを特徴とする請求項8に記載の組成物。

【請求項10】 少なくとも1種の着色物質を更に含有していることを特徴とする請求項1ないし9の何れか1項に記載の組成物。

【請求項11】 オレフィンコポリマーが：

(A) α -オレフィンコポリマー、オレフィンとシクロオレフィンのコポリマー、ジエン等のエチレン性結合を有するモノマーと α -オレフィンのコポリマー；

(B) タクチックとアタクチック単位を有する α -オレフィンコポリマー；から選択されることを特徴とする請求項1ないし10の何れか1項に記載の組成物。

【請求項12】 α -オレフィンコポリマーが、エチレン又はプロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのバイポリマー、及びエチレン、プロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのターポリマーから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項13】 C_4-C_{16} α -オレフィンが、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、3,3,5-トリメチル-1-ヘキセン、3-メチル-1-ペンテン及び4-メチル-1-ペンテンから選択されることを特徴とする請求項12に記載の組成物。

【請求項14】 α -オレフィンのモル%が40%以下、好ましくは30%以下であることを特徴とする請求項12又は13に記載の組成物。

【請求項15】 オレフィンコポリマーが、エチレン又はプロピレンと、シクロブテン、シクロヘキセン、シクロオクタジエン、ノルボルネン、ジメタノオクタヒドロナフタレン(DMON)、エチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン及び4-ビニルシクロヘキセンから選ばれるシクロオレフィンとのバイポリマー、及びエチレンとプロピレンと前記シクロオレフィンのターポリマーから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項16】 オレフィンとシクロオレフィンのコポリマーが20モル%未満のシクロオレフィンを含有していることを特徴とする請求項15に記載の組成物。

【請求項17】 α -オレフィンとシクロオレフィンのコポリマーが、18モル%未満のノルボルネンを含有するエチレン/ノルボルネンコポリマーであることを特徴とする請求項16に記載の組成物。

【請求項18】 ジエン等のエチレン性結合を有するモノマーと α -オレフィンのコポリマーが、エチレン/ブタジエン及びエチレン/イソプレンのバイポリマーから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項19】 バイポリマーが20モル%未満のエチレン性結合を有するモノマーを含有していることを特徴とする請求項18に記載の組成物。

【請求項20】 タクチック及びアタクチック単位を有する α -オレフィンコポリマーが、アイソタクチック及びアタクチック単位を有するポリプロピレンとシンジオタクチック及びアタクチック単位を有するポリプロピレンから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項21】 タクチック単位のレベルが30モル%未満であることを特徴とする請求項20に記載の組成物。

【請求項22】 オレフィンコポリマーがメタロセン合成法により得られるものであることを特徴とする請求項1ないし21の何れか1項に記載の組成物。

【請求項23】 液状脂肪相が、鉱物、動物、植物又は合成由来の炭素含有油、炭化水素含有油、フッ化油及び/又はシリコン油の、単独物又は混合物からなることを特徴とする請求項1ないし22の何れか1項に記載の

組成物。

【請求項24】 液状脂肪相が、流動パラフィン又は流動ワセリン、ミンク油、タートル油、大豆油、ペルヒドロスクワレン、スイートアルモンド油、カロフィルム油、バーム油、パーリウム油、グレープシード油、ゴマ油、コーン油、菜種油、ヒマワリ油、綿実油、アブリコット油、ヒマシ油、アボカド油、ホホバ油、オリーブ油又は穀類胚芽油；ラノリン酸、オレイン酸、ラウリル酸又はステアリン酸のエステル；ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、ラウリン酸ヘキシル、アジピン酸ジイソプロピル、イソノナン酸イソノニル、2-エチルヘキシルパルミタート、2-ヘキシルデシルラウラート、2-オクチルデシルパルミタート、2-オクチルドデシルミリストアート又はラクタート、ジ(2-エチルヘキシル)スクシナート、リンゴ酸ジイソステアリル、トリイソステアリン酸グリセリル又はトリイソステアリン酸ジグリセリル等の脂肪エステル；ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸又はイソステアリン酸等の少なくとも12の炭素原子を有する高級脂肪酸；ステアリルアルコール又はオレイルアルコール、リノレイル又はリノレンイルアルコール、イソステアリルアルコール又はオクチルドデカノール等の少なくとも12の炭素原子を有する高級脂肪アルコール；PDMS類等のシリコン油で、フェニルトリメチコン、フェニルトリメチルシロキシジフェニルシロキサン、ジフェニルメチルジメチルトリシロキサン、ジフェニルジメチコン、フェニルジメチコン又はポリメチルフェニルシロキサン等のフェニル化されていてもよいもの、又は脂肪族及び／又は芳香族基、又はヒドロキシル、チオール及び／又はアミン基等の官能基で置換されていてもよいもの；脂肪酸、脂肪アルコール、又はポリオキシアルキレンで変性したポリシロキサン、フッ化シリコン又は過フッ化油；オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ヘキサデカメチルシクロヘキサシロキサン、ヘプタメチルヘキシルトリシロキサン、ヘプタメチルオクチルトリシロキサン又は C_8-C_{16} イソパラフィン、特にイソドデカン及びイソヘキサデカン等の揮発性油から選択されることを特徴とする請求項1ないし23の何れか1項に記載の組成物。

【請求項25】 液状脂肪相が、
 — ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータが17 (MPa)^{1/2} 未満の非水性液状化合物、
 — 又は、ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータが20 (MPa)^{1/2} 以下のモノアルコール、
 — 又はそれらの混合物、からなる群から選択されることを特徴とする請求項1ないし24の何れか1項に記載の組成物。

【請求項26】 脂肪相が室温で揮発する少なくとも1

種の油を含有することを特徴とする請求項1ないし25の何れか1項に記載の組成物。

【請求項27】 植物、動物、鉱物、合成又はシリコン由来のロウ、ガム及び／又はペースト状脂肪物質、及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の付加的な脂肪相を更に含有していることを特徴とする請求項1ないし26の何れか1項に記載の組成物。

【請求項28】 フィラー、顔料、真珠光沢剤及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の微粉状化合物が含まれることを特徴とする請求項1ないし27の何れか1項に記載の組成物。

【請求項29】 微粉状化合物とコポリマーとが、1未満の顔料／コポリマーの割合で存在していることを特徴とする請求項28に記載の組成物。

【請求項30】 微粉状化合物が、組成物の全重量に対して0.1～98%であることを特徴とする請求項28又は29に記載の組成物。

【請求項31】 微粉状化合物が、組成物の全重量に対して1～30%であることを特徴とする請求項29に記載の組成物。

【請求項32】 オレフィンコポリマーが、組成物の全重量に対して60% (乾燥物質基準) までであることを特徴とする請求項1ないし31の何れか1項に記載の組成物。

【請求項33】 オレフィンコポリマーが、組成物の全重量に対して12～60% (乾燥物質基準) であることを特徴とする請求項1ないし32の何れか1項に記載の組成物。

【請求項34】 液状脂肪相が、2～7のケイ素原子を有し、1～10の炭素原子を有するアルキル基を有していてもよい直鎖状又は環状のシリコン、及び C_8-C_{16} イソパラフィン、及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の油を含有していることを特徴とする請求項1ないし33の何れか1項に記載の組成物。

【請求項35】 棒状形態；25℃で1～40 Pa・s オーダーの動粘度を有する柔軟なペースト状の形態；皿状形態；油性ゲル；油性の液体；又はイオン性又は非イオン性の脂質を含有する小胞分散液の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし34の何れか1項に記載の組成物。

【請求項36】 油中水型、水中油型又はロウ中水型のエマルションの形態で提供され、該ロウが50%以下の結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーと少なくとも1種の油からなるものであってよいことを特徴とする請求項1ないし35の何れか1項に記載の組成物。

【請求項37】 無水の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし34の何れか1項に記載の組成物。

【請求項38】 皮膚及び／又は唇及び／又は睫毛のメークアップ及び／又は手入れ用の製品の形態で提供され

ることを特徴とする請求項1ないし37の何れか1項に記載の組成物。

【請求項39】 成型ファンデーション、成型フェイスパウダー、成型アイシャドウ、口紅、唇の手入れ用バalm又はベース、又は眼の下の環状部に抗する製品、マスカラ又はボディのメイクアップ用の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし38の何れか1項に記載の組成物。

【請求項40】 50%以下の結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーからなる、セラチン物質への適用用組成物のための薬剤。

【請求項41】 50%以下の結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーからなる、化粧品組成物用の薬剤。

【請求項42】 結晶性オレフィンコポリマーが：

(A) α -オレフィンコポリマー、オレフィンとシクロオレフィンのコポリマー、ジエン等のエチレン性結合を有するモノマーと α -オレフィンのコポリマー；

(B) タクチック及びアタクチック単位を有する α -オレフィンコポリマー；から選択されることを特徴とする請求項40又は41に記載の薬剤。

【請求項43】 コポリマーが、エチレン又はプロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのバイポリマー、及びエチレンとプロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのターポリマーから選択されることを特徴とする請求項42に記載の薬剤。

【請求項44】 C_4-C_{16} α -オレフィンが、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、3,3,5-トリメチル-1-ヘキセン、3-メチル-1-ペンテン及び4-メチル-1-ペンテンから選択されることを特徴とする請求項43に記載の薬剤。

【請求項45】 オレフィンとシクロオレフィンのコポリマーが、エチレン又はプロピレンと、シクロブテン、シクロヘキセン、シクロオクタジエン、ノルボルネン、ジメタノオクタヒドロナフタレン、エチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン及び4-ビニルシクロヘキセンから選択されるシクロオレフィンとのバイポリマー、及びエチレンとプロピレンと前記シクロオレフィンのターポリマーから選択されることを特徴とする請求項42に記載の薬剤。

【請求項46】 エチレン性結合を有するモノマーと α -オレフィンのコポリマーが、エチレン/ブタジエン及びエチレン/イソプレンのバイポリマーから選択されることを特徴とする請求項42に記載の薬剤。

【請求項47】 タクチック及びアタクチック単位を有する α -オレフィンコポリマーが、アイソタクチック及びアタクチック単位を有するポリプロピレンとシンジオ

タクチック及びアタクチック単位を有するポリプロピレンから選択されることを特徴とする請求項42に記載の薬剤。

【請求項48】 オレフィンコポリマーがメタロセン合成法により得られたものであることを特徴とする請求項40ないし47の何れか1項に記載の薬剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、脂肪相に溶解又は分散可能な少なくとも1種のオレフィンコポリマーを含有し、特に、化粧品、皮膚科学、製薬及び衛生の分野用であることを意図した組成物に関する。更に本発明は、ヒトの顔とヒトのボディの双方の皮膚、粘膜、例えば唇及び下瞼の内側、又は体表面成長部、例えばまつげ、眉毛、爪及び髪の手入れ及び／又はメイクアップ用の組成物に関する。

【0002】この組成物は、特に、棒状又は皿状に成型された製品の形態、例えば口紅又はリップバalm、成型ファンデーション、眼の下の環状部に抗するための製品、アイシャドウ又はフェイスパウダー、多かれ少なかれ流動的なペースト又はクリーム の形態、例えば液状ファンデーション又は液状口紅、アイライナー、ボディのメイクアップ用、日光保護用又は皮膚の着色用組成物、又はマスカラ、又はフリーもしくはコンパクトパウダーの形態で提供される。

【0003】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】ヒトの皮膚又は唇をメイクアップ又は手入れするための製品、例えばファンデーション又は口紅は、一般的に、脂肪相、例えばロウ類及び油類、顔料及び／又はフィラー、場合によっては添加剤、例えば化粧品用及び／又は皮膚科学的活性成分を含有している。また、それらは、ブラシで塗布される有色又は無色のペーストを得ることが可能な柔軟なコンシステンシーを有する、いわゆる「ペースト状」製品を構成することもできる。

【0004】ロウの使用にはある欠点がある。特に、これらのロウの結晶度をコントロールすることは難しく、存在するクリスタライトはサイズが大きい。従って、このようなロウを、セラチン物質、例えば皮膚、唇及び体表面成長部に適用される組成物、特に化粧品用組成物に使用すると、組成物、従って塗布された皮膚がマットな状態になる。

【0005】この問題を克服するために、ロウ類に代えて従来のポリオレフィン類を使用することがなされている。しかしながらこれでもやはり結晶度が高すぎてコントロールすることが困難である。更に、多くはスフェライト型であるクリスタライトの大きさと形態は、所望の化粧品特性、特に光沢を有する組成物の製造には不都合なものであった。

【0006】資生堂は、特開昭61-65809号にお

いて、(3次元網状組織を有する)シロキシシリカート樹脂、環状シリコン鎖を持つ揮発性シリコン油及び粉状フィラーを含有する口紅組成物を案出している。同様に、ノエビアは、特開昭62-61911号公報において、一又は複数の炭化水素含有口紅を含有する口紅、アイライナー又はファンデーション組成物を開示している。また、レブロンは少なくとも1種の親水性基又は親水性部及び少なくとも1種の親油性基又は親油性部を有するオルガノシロキサンポリマー乳化剤と揮発性溶媒とを含有する半マット化粧品用組成物を国際特許公開第97/17362号公報に開示している。

【0007】これらの組成物は、シリコン油が蒸発した後に、経時的に不快感(乾燥した感じや突張感)を生じ、女性の中にはこの種の口紅の使用を中止する人もでてくる皮膜を唇上に残すという不具合がある。

【0008】プロクター・アンド・ギャンブル社は、国際特許公開第96/36323号において、良好な保持力を有し、耐水性がある油中水型エマルジョンタイプのマスカラ組成物を案出している。これらの組成物は、アルキル又はアルコキシジメチコンコポリオール型の界面活性剤、炭化水素含有油、顔料及びフィラー、並びに口紅類と組み合わせて、一般にラテックスとして知られている水不溶性ポリマーをとりわけ含有している。

【0009】レブロンは、国際特許公開第96/10642号公報において、室温で付着するポリマー、揮発性溶媒、非揮発性油及び粒状乾燥物質を含有する光沢性化粧品用組成物を開示している。付着性ポリマーは、ビニル、メタクリル又はアクリル骨格と懸垂シロキサンとフッ化基とを有するポリマー、ビニル、メタクリル又はアクリル骨格と懸垂シロキサン基とを有するポリマー、及びブロック又はグラフト化ビニルシリコンコポリマーから選択される。

【0010】加えて、欧州特許公開第497144号公報及び欧州特許公開第2357244号公報には、口紅類、軽又は揮発性油及び顔料と組み合わせて、スチレン-エチレン-プロピレンのブロックコポリマーを含有する組成物が開示されている。これらの組成物は、あまり快適ではなく、化粧品特性も平凡で、処方が困難であるといった欠点を示す。

【0011】よって、上述した欠点を示さず、消費者の要望に応じて、多かれ少なかれ光沢のある外観を付与し、塗布された皮膚又は唇を時間が経過しても乾燥させず、不快感を与えない組成物が尚も必要とされている。

【0012】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本出願人は、全く驚くべきことに、脂肪相に溶解又は分散可能で、コントロールされた中程度の結晶度を有する少なくとも1種のオレフィンコポリマーを、化粧品用、皮膚科学的、製薬用及び/又は衛生用組成物、好ましくは生理学的に許容可能な組成物に使用すると、移りがほと

んどなく、耐水性があると同時に、適用し一日中つけていることが非常に好ましい非常に良好な保持力の皮膜を得ることができることを見出した。この皮膜は特に柔軟でフレキシブルであり、べとつかない。

【0013】本発明に係るコントロールされた中程度の結晶度を有するコポリマーは、特定の大きさと特定の形態を持つクリスタライトを示す。それらは、大きなサイズのスフェライト型クリスタライトをほとんど又は全く含有せず、大部分は小さなサイズのラメラ状又は房状(fringed)ミセル型のクリスタライトを含有する。クリスタライトは、好ましくは1 μ m以下、より好ましくは500nm未満の大きさを有する。

【0014】しかして、本発明の主題事項は、液状脂肪相を含有してなるケラチン物質に適用される組成物において、有効量、特に組成物の全重量に対して少なくとも2重量%の、液状脂肪相に溶解又は分散可能で、50%以下の結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーを含有することを特徴とする組成物にある。この組成物は、特に化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用組成物である。よって、皮膚、粘膜及び体表面成長部、特にケラチン繊維と融和性のある成分を含有する。この組成物は、好ましくは少なくとも1種の着色物質を更に含有する。

【0015】本発明の他の主題事項は、少なくとも1種の化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用液状脂肪相と、場合によっては室温で固体である少なくとも1種の口紅を含有し、成型製品の形態で提供される組成物において、有効量、好ましくは組成物の全重量に対して少なくとも2重量%の、液状脂肪相に溶解又は分散可能で、50%以下の結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーを更に含有することを特徴とする組成物にある。上述したように、この組成物は、皮膚、粘膜及び体表面成長部、特にケラチン繊維と融和性のある成分、特に少なくとも1種の着色物質を更に含有し得る。

【0016】オレフィンコポリマーは有効な量、又は特に耐水性及び/又は光沢があり、及び/又は良好な保持力を有する皮膜の生成に十分な量で存在する。

【0017】本出願の組成物に使用される結晶性オレフィンコポリマー又はコポリマー類は、任意のオレフィンコポリマー、すなわちコントロールされた中程度、特に50%以下、好ましくは5~40%、更に好ましくは10~35%の結晶度を有する、オレフィン単位だけを含むコポリマーとすることができる。これらのコポリマーは、一般的にエラストマー又はプラストマーであり、公知の方法、特にラジカル経路、チーグラナーナック触媒法又はメタロセン触媒法、好ましくはメタロセン触媒法で合成可能である。

【0018】共重合は、バルク、溶液又は分散物で行うことができる。本発明において好適な結晶性オレフィ

ンコポリマーは150℃未満、好ましくは110℃以下の融点を有する。

【0019】本発明の結晶性オレフィンコポリマーは、好ましくは30000以上の重量平均分子量Mw（より好ましくは $Mw \geq 40000$ ）と、3.5以下の多分散指数 Mw/Mn （より好ましくは ≤ 2.5 ）とを有する。ここで、Mnは数平均分子量である。

【0020】コポリマーの結晶度は、よく知られているように、結晶度が低い場合には、X線回折又は示差走査熱量測定(DSC)により測定される。本発明の好ましいオレフィンコポリマーは、メタロセン触媒法により得られるオレフィンコポリマーである。メタロセン触媒法によれば、結晶度、ポリマー鎖の長さ及びポリマー鎖中の単位の分布均一性に関するコポリマーの性質をコントロールすることができる。本触媒法によれば、密な組成と殆ど同じ長さのポリマー鎖を得ることができる。

【0021】この合成経路により、コポリマーの分子量をかなり良好にコントロールでき、多分散性を低くする（多分散指数 ≤ 2 ）。化学組成が非常に類似する、ポリマー鎖へのモノマーの導入を非常に良好にコントロールできる。このため、結晶性、すなわち結晶度、再現性、及び形成されるクリスタライトの性質とサイズをかなり良好にコントロールすることができる。

【0022】メタロセン触媒法による本合成法の利点に関する更なる詳細については、M. P. Zamoraらの「ポリマー科学と工学における先端技術(Emerging Technologies in Polymer Science and Engineering)」(Plastics Engineering, 1997年5月、75~79頁)、及びS. Bensasonらの「モノマー含有量に基づく均質なエチレン-オクテンコポリマーの分類(Classification of Homogeneous Ethylene-Octene Copolymers Based on Comonomer Content)」(Journal of Polymer Science, B部: Polymer Physics, 第34巻、130~1315頁、1996年)の論文を参考にすることができる。

【0023】本発明に適切なオレフィンコポリマーにおいて、結晶構造はコポリマー中の非晶質モノマーのレベル(量)に応じて変化する。例えば、上述したS. Bensasonらの論文に記載されているような、エチレン/オクテンコポリマーの場合、オクテンの含有量が増加すると、次のような変化が生じる：— オクテン含有量 ≤ 2.5 モル%の場合、タイプIVとして知られているラメラ構造、球晶(スフェライト)が存在するはっきりと識別される結晶構造に変化し、コポリマーは50%を越える結晶度を示す；— オクテン含有量が3モル%オーダーの場合、まだ結晶性が高く、ラメラ状であるがより小さな球晶を有する構造(タイプIIIの構造)に変化し、コポリマーは38~50%の結晶度を有する；— オクテン含有量が5~6モル%の場合、結晶性が低下し、ほとんど球晶を有さず、ラメラ状体と「房状ミセル」の混合物の構造(タイプIIの構造)に変化

し、コポリマーは28~38%の結晶度を有する；— 最後に、オクテン含有量が8~14モル%の場合、更に結晶性が弱まり、もはや球晶もラメラ状体も有さず、

「房状ミセル」のみとなった構造(タイプIの構造)に変化し、コポリマーは10~28%の結晶度を有する。

【0024】本発明において推奨されるコポリマーは、タイプI及びIIの構造を有するものである。タイプIVの構造をした過度の結晶性を有するコポリマーは、本発明に好適なものではない。

【0025】コポリマーは、その性質と組成物に要求される用途に応じて当業者により選択される。よって、ポリマーは皮膜を形成するものであってもなくてもよい。

【0026】本発明の他の主題事項は、揮発性液状脂肪相を含有し、化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用活性成分から選択される少なくとも1種の活性成分を含有する上述した組成物にある。「揮発性脂肪相」という用語は、1時間未満で、皮膚又は唇から蒸発可能な任意の非水性媒体を意味するものと理解される。揮発性脂肪相は、特に、室温(20~25℃)と大気圧で、10⁻³~300mmHgの範囲の0ではない蒸気圧を有する油類又は溶媒類を含む。油とは室温と大気圧で液状である任意の非水性体を意味するものと理解される。

【0027】本発明の他の主題は、粘膜、例えば唇、及び/又は皮膚上に付着する組成物の皮膜の移りを低減させ、更にはなくし、及び/又は耐水性及び/又は光沢及び/又は良好な保持力を有する皮膜を得るための、少なくとも1種の化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用の液状脂肪相と、少なくとも1種の口周、特に室温で固体状の口周を含有する成型製品の形態の組成物自体又はその製造における、有効量、特に組成物の全重量に対して少なくとも2重量%の、該液状脂肪相に溶解又は分散可能で、50%以下の結晶度を有する結晶性オレフィンコポリマーの使用にある。

【0028】本発明の他の主題事項は、皮膚及び/又は粘膜、例えば唇上に付着する耐水性及び/又は光沢及び/又は良好な保持力を有する皮膜を得るための、液状脂肪相と、化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用活性成分、着色物質及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の成分を含有するケラチン物質へ適用される組成物自体又は製造における、有効量、特に組成物の全重量に対して少なくとも2重量%の、液状脂肪相に溶解又は分散可能で、50%以下の結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーの使用にある。

【0029】本発明の更なる主題事項は、唇又は皮膚のそれぞれに、上述した化粧品用組成物を適用することからなる、唇又は皮膚の美容手入れ又はメイクアップ方法にある。

【0030】コポリマーは、融点以上で加熱することにより、組成物の脂肪相に溶解させることができる。コポリマーは、有利には、少なくとも1種の安定剤により、

界面安定化された分散粒子の形態で提供される。

【0031】本発明の組成物に粒子の分散液を使用する利点の一つは、脂肪相中で粒子が、集塊を形成することなく個々の粒子の状態を維持していることであり、これはナノメートルサイズの無機粒子の場合にはみられない。コポリマー分散液の他の利点は、高レベルのコポリマーの存在下でも、非常に流動性のある組成物（130センチポアズのオーダー）を得ることができることにある。

【0032】更に、本発明の組成物は、皮膚、半粘膜又は粘膜への付着性及び展伸性、並びに滑らかさ及び好ましい感触において、特に有利な特性を示すことが見出されている。更に、これらの組成物は、特に従来のメークアップ除去用ミルクによる除去が容易であるといった利点を有する。

【0033】本発明の組成物に使用可能な結晶性オレフィンコポリマーの第1のクラスは、 α -オレフィンコポリマー、特に C_2-C_{16} の α -オレフィン、好ましくは C_2-C_{12} の α -オレフィンである。これらのコポリマーは、室温（20～25℃）での密度（d）が、 $0.86 \leq d \leq 0.91$ 、好ましくは $0.86 \leq d \leq 0.905$ である。これらのコポリマーは、好ましくはバイポリマー又はターポリマー、特にバイポリマーである。

【0034】本発明の組成物に推奨されるバイポリマーとしては、エチレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのバイポリマー、及びプロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのバイポリマーを挙げることができる。より好ましくは、 α -オレフィンは、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、3, 5, 5-トリメチル-1-ヘキセン、3-メチル-1-ペンテン及び4-メチル-1-ペンテンから選択される。これらのモノマーの中でも、1-ブテン及び1-オクテンが特に好ましい。

【0035】バイポリマー中の α -オレフィンレベルは、一般的に2～40モル%、好ましくは3～30モル%、更に好ましくは4～20モル%である。推奨されるエチレン-オクテンバイポリマーは、オクテン含有量が5.2モル%～6.2モル%、結晶度が28～38%のプラストマー、及びオクテン含有量が8～14モル%、結晶度が10～28%のエラストマーである。これらのバイポリマーは、メタロセン触媒法により合成される。

【0036】このようなバイポリマーはダウ・ケミカル社（Dow Chemical）からアフィニティ（Affinity）（登録商標）（プラストマー）及びエンゲージ（Engage）（登録商標）（エラストマー）の商品名で販売されている。エチレン-ブテンバイポリマーは、エクソン社（Exxon）からイグザクト・レジン（Exact Resins）（登録

商標）の商品名で販売されている。

【0037】ターポリマーとしては、エチレン、プロピレン及び C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのターポリマーを挙げることができる。このようなターポリマーにおける C_4-C_{16} α -オレフィンの量は上述にて示したものであり、好ましい α -オレフィンはブテン、ヘキセン及びオクテンである。

【0038】本発明に対して好適な α -オレフィンコポリマーとしては、欧州特許第81787号に開示されたコポリマーも挙げることができる。

【0039】本発明の組成物に適切なオレフィンコポリマーの第2のクラスは、エチレン又はプロピレンとシクロオレフィンのコポリマー、特にバイポリマーである。コポリマー中のシクロオレフィン含有量は一般的に20モル%未満である。使用可能なシクロオレフィンとして、シクロブテン、シクロヘキセン、シクロオクタジエン、ノルボルネン、ジメタノオクタヒドロナフタレン（DMON）、エチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン及び4-ビニルシクロヘキセンを挙げることができる。

【0040】このクラスの推奨されるコポリマーは、エチレンとノルボルネンのコポリマーである。これらのコポリマーにおけるノルボルネン含有量は、要求される結晶性を示すためには、一般に18モル%未満であり、これらのコポリマーはメタロセン触媒法により合成される。適切なエチレン/ノルボルネンコポリマーは、ミツイ・ペトロケミカル又はミツイーセッカからアベル（Apel）（登録商標）の商品名で、またヘキスト・セラニーズ社（Hoechst-Celanese）からトパス（Topas）（登録商標）の商品名で販売されている。

【0041】他の推奨されるエチレン/シクロオレフィンコポリマーは、エチレン/シクロブテン及びエチレン/シクロヘキセンのバイポリマーで、シクロオレフィン含有量が低いもの、一般的に20モル%未満のものである。

【0042】適切なオレフィンコポリマーの第3のクラスは、立体規則性がコントロールされたオレフィンコポリマー、すなわち立体規則性が異なる単位を含有するコポリマーからなる。これら立体規則性がコントロールされたコポリマーとしては、アイソタクチックプロピレン/アタクチックプロピレンとシンジオタクチックプロピレン/アタクチックプロピレンのコポリマーを挙げることができる。

【0043】アイソ又はシンジオタクチック単位又はブロックはコポリマーに結晶性を付与する一方、非晶質アタクチック単位又はブロックは、コポリマーが過度に結晶化することを防止し、結晶度並びにクリスタライトの形態及び大きさを調節する。よって、コポリマーに結晶性を付与する単位であるアイソ又はシンジオタクチック単位の含有量は、コポリマーにおいて必要な結晶度パー

セント(≦50%)を得るために予め決定される。タクチック単位の含有量は、一般的に10~80モル%である。しかしながら、タクチック単位の含有量は、好ましくは30モル%未満である。これらのコポリマーはメタロセン触媒法により合成される。

【0044】本発明に適切なオレフィンコポリマーの第4のクラスは、モノオレフィンと、モノオレフィン以外のエチレン性結合を持つモノマー、例えばジエン類のコポリマー、例えばエチレン/ブタジエン、プロピレン/ブタジエン、エチレン/イソプレン及びプロピレン/イソプレンのバイポリマー、及びエチレン/プロピレン/ジエンのターポリマーからなり、メタロセン合成法により得られる。エチレン性結合を有するモノマー、例えばジエン類の、結晶化がコントロールされたコポリマーにおける割合は、一般的に3~20モル%である。

【0045】コポリマーの結晶性の調節度合いを改善するために、本発明の組成物に、結晶化を防止し、微小結晶の形成を促進する添加剤を任意に加えることもできる。これらの添加剤は、少量しか使用されないが、物質全体に均一に分布する多数の小さな発現部位を構成する。これらの添加剤は、典型的には有機又は無機物質の結晶である。

【0046】結晶化しなければならない有機添加剤の場合、有機添加剤はコポリマーの溶解領域よりも高い融点を有するものでなくてはならず、また好ましくは微小結晶を形成するものである。好ましくは、その融点よりも高い温度では、この物質は液状脂肪相と溶融ポリマーの混合物に溶解する。よって、冷却中に、最初に溶解させておいた添加剤が、混合物中によく分布した多数の微小結晶の形態に再結晶化し、ついでポリマーが再結晶化し、添加剤の結晶が存在するため、小さな結晶領域がもたらされる。これは、従来のポリマー再結晶化方法である。

【0047】また、本発明の第1のオレフィンコポリマーと第1のオレフィンコポリマーと部分的に融和性のある第2の結晶性ポリマー又はコポリマーとを混合することにより、本発明のオレフィンコポリマーの形態及び大きさ及び結晶度を調節することもできる。第2のポリマー又はコポリマーは、本発明のオレフィンコポリマーの結晶度よりも高い結晶度を有し、第1のコポリマーとは結晶度が異なる以外は本発明のオレフィンコポリマーであってもよい。更に、第2の結晶性ポリマーは、性質が異なるポリマー、例えばラジカル共重合により得られたコポリエチレン/酢酸ビニル又は結晶化可能なポリエチレン、例えば化粧品分野で通常使用されているものとすることができる。

【0048】結晶度を調節する方法に関する更なる詳細のために、S. Bensasonらの「均質なエチレン-オクテンコポリマーのエラストマー混合物(Elastomeric blends of homogeneous ethylene-octene copolymer

s)」(Polymer、第38巻、第15号、1997年、3913-19頁)、及びS. Bensasonらの「均質なエチレン-オクテンコポリマーの混合物(Blends of homogeneous ethylene-octene copolymers)」(Polymer、第38巻、第14号、1997年、3513-20頁)と題された論文を参照することができる。

【0049】コポリマーが分散する液状脂肪相は、それらが均質で、安定した混合物であり、考慮される使用において融和性がある限りは、特に、鉱物、動物、植物又は合成由来の炭素含有油、炭化水素含有油、フッ化油及び/又はシリコン油の単独物又は混合物から選択される任意の化粧品的又は皮膚科学的に許容可能な油、より一般的には生理学的に許容可能な油からなる。「液状脂肪相」という用語は、20~25℃の室温と大気圧で液状の、任意の非水性媒体を意味するものと理解される。

【0050】例えば、炭化水素含有油、例えば流動パラフィン又は流動ワセリン、ミンク油、タートル油、大豆油、ペルヒドロスクワレン、スイートアルモンド油、カロフィラム油(calophyllum oil)、パーム油、グレープシード油、ゴマ油、コーン油、パーリウム油(parleam oil)、アララ油、菜種油、ヒマワリ油、綿実油、アプリコット油、ヒマシ油、アボカド油、ホホバ油、オリブ油又は穀物胚芽油；ラノリン酸、オレイン酸、ラウリン酸又はステアリン酸のエステル；脂肪エステル類、例えばミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、ラウリン酸ヘキシル、アジピン酸ジイソプロピル、イソノナン酸イソノニル、2-エチルヘキシルパルミタート、2-ヘキシルデシルラウラート、2-オクチルデシルパルミタート、2-オクチルドデシルミリスタート又はラクタート、ジ(2-エチルヘキシル)スクシナート、リンゴ酸ジイソステアリル、トリイソステアリン酸グリセリル又はトリイソステアリン酸ジグリセリル；少なくとも12の炭素原子を有する高級脂肪酸、例えばミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸又はイソステアリン酸；少なくとも12の炭素原子を有する高級脂肪アルコール、例えばステアリルアルコール又はオレイルアルコール、リノレイル又はリノレニルアルコール、イソステアリルアルコール又はオクチルドデカノール；シリコン油、例えば、ポリジメチルシロキサン(PDMS)で、フェニル化していてもよいもの、例えばフェニルトリメチコーン、フェニルトリメチルシロキシジフェニルシロキサン、ジフェニルメチルジメチルトリシロキサン、ジフェニルジメチコーン、フェニルジメチコーン又はポリメチルフェニルシロキサン、又はヒドロキシル、チオール及び/又はアミン基等の官能基又はフッ化されていてもよい脂肪族及び/又は芳香族基で置換されていてもよいもの；脂肪酸、脂肪アルコール又はポリオキシアルキレンで変性したポリシロキサン、フッ化シリコーン又は過フッ化油を挙げるこ

ができる。

【0051】好ましいシリコン油として、ポリジメチルシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサン、ポリオキシアルキレンブロック又はグラフト、特にポリオキシエチレン又はコポリ（オキシエチレン-オキシプロピレン）ブロック又はグラフトを含有するシリコン、例えばジメチコンコポリオール、疎水性の炭化水素含有基（例えば C_2-C_{30} アルキル基）及びポリオキシエチレン化又はコポリ（オキシエチレン化/オキシプロピレン化）ブロック又はグラフトを同時に担持するシリコン、例えばアルキルジメチコンコポリオール、又はフッ化又は過フッ化基を担持するシリコン、例えばペルフルオロアルキル化ポリジメチルシロキサン及びペルフルオロアルキル化ポリメチルフェニルシロキサンを挙げることができる。

【0052】有利には、室温で揮発する一又は複数の油を使用することもできる。これらの揮発性油は全体的な「耐移り性」を有する皮膜を得るのに好ましいものである。これらの油が蒸発した後、柔軟で粘着質でなく、組成物が適用された皮膚又は唇のそれぞれの動きに追従する皮膜形成付着物が皮膚又は粘膜上に得られる。加えて、これら揮発性油により、皮膚、粘膜又は体表面成長部への組成物の適用が容易になる。これらの油は、シリコン鎖の末端にアルキル又はアルコキシ基を含有しているか、又は懸垂アルキル又はアルコキシ基を有するシリコン油又は炭化水素含有油とすることができる。

【0053】本発明で使用可能な揮発性のシリコン油としては、2~7のケイ素原子を有し、1~10の炭素原子を有するアルキル又はアルコキシ基を有していてもよい直鎖状又は環状のシリコン、並びに揮発性の C_8-C_{16} イソパラフィン及びフッ化又は過フッ化油を挙げることができる。これらの揮発性油は組成物の全重量に対して、特に30~97.99重量%、好ましくは30~75%である。本発明で使用可能な揮発性油としては、特に、オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ヘキサデカメチルシクロヘキサシロキサン、ヘプタメチルヘキサトリシロキサン、ヘプタメチルオクタトリシロキサン、又は C_8-C_{16} イソパラフィン、例えば「アイソパー（Isopars）」、パーメチル（Permetyl）、特にイソドデカン又はイソヘキサデカンを挙げることができる。

【0054】本発明の特定の実施態様において、液状脂肪相は、

- ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータが $17 (MPa)^{1/2}$ 未満の非水性液状化合物、
- 又は、ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータが $20 (MPa)^{1/2}$ 以下のモノアルコール、
- 又は、それらの混合物、からなる群から選択される。

【0055】ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータ

δ は、Eric A. Grulkeの「ポリマーハンドブック」（第3版、VII章、519-559頁）の「溶解パラメータ値」の文献にて、次の関係：

$$\delta = (d_D^2 + d_P^2 + d_H^2)^{1/2}$$

〔上式中、

— d_D は、分子衝突中に励起される双極子の形成により生じるロンドンの分散力を特性付け、

— d_P は、永久双極子間のデバイ相互作用力を特性付け、

— d_H は、特定（水素結合、酸/塩基又は供与体/受容体等の型）の相互作用力を特性付ける〕により定義されている。ハンセンによる3次元の溶解空間における溶媒の定義は、C. M. Hansenの文献「3次元溶解パラメータ」[J. Paint Technol. 39, 105 (1967)]に記載されている。

【0056】ハンセン溶解空間の包括的な溶解パラメータが $17 (MPa)^{1/2}$ 以下の液状脂肪相としては、ポリオールと脂肪酸エステル、特にトリグリセリドから形成される植物性油、例えば、ヒマワリ油、ゴマ油又は菜種油、又は長鎖（すなわち、6~20の炭素原子を有するもの）の酸又はアルコールから誘導されるエステル、特に、Rが、7~19の炭素原子を有する高級脂肪酸残基を表し、R'が3~20の炭素原子を有する炭化水素含有鎖を表す式 $RCOOR'$ のエステル、例えば、パルミチン酸エステル、アジピン酸エステル及び安息香酸エステル、特にアジピン酸ジイソプロピルを挙げることができる。また、炭化水素、特に、流動パラフィン、流動ワセリン又は水素化ポリイソブチレン、イソドデカン、又は揮発性のイソパラフィンである「アイソパー」を挙げることができる。更に、シリコン油、例えばフッ化されていてもよい脂肪族及び/又は芳香族基、又は官能基、例えば、ヒドロキシル、チオール及び/又はアミン基で置換されていてもよい、ポリメチルフェニルシロキサン及びポリジメチルシロキサン、及び揮発性シリコン油、特に揮発性環状シリコン油を挙げることができる。また更に、(i) 6個を超える炭素原子を有する直鎖状、分枝状又は環状のエステル、(ii) 6個を超える炭素原子を有するエーテル、(iii) 6個を超える炭素原子を有するケトン、から単独に又は混合物として選択される溶媒を挙げることができる。

【0057】「ハンセン溶解空間の包括的な溶解パラメータが $20 (MPa)^{1/2}$ 以下のモノアルコール」という用語は、少なくとも6個の炭素原子を有する脂肪族脂肪モノアルコールで、炭化水素含有鎖が置換基を含んでいないものを意味するものと理解される。本発明のモノアルコールとしては、オレイルアルコール、デカノール、ドデカノール、オクタデカノール及びリノレイルアルコールを挙げることができる。

【0058】非水性媒体としては、L. V. M. H. の仏国特許公開第2710646号公報に記載のものを使

用することができる。非水性媒体の選定は、コポリマーを構成するモノマーの性質に基づいて、当業者によりなされる。

【0059】更に、コポリマーが溶解又は分散する液状脂肪相は、組成物の全重量に対して30～97.99%、好ましくは30～75%である。

【0060】組成物は、一又は複数の微粉状化合物、及び／又は一又は複数の脂溶性染料を含む着色物質を、例えば組成物の全重量に対して0.01～70%の割合で含有し得る。微粉状化合物は、化粧品用及び／又は皮膚科学的組成物に通常使用されている顔料及び／又は真珠光沢剤及び／又はフィラーから選択することができる。微粉状化合物は、組成物の全重量に対して0.1～98%、例えば1～80%である。微粉状化合物の量を少なくすればする程、快適性が良好になる。従って、これらの微粉状化合物は、好ましくは0.1～40%、更に好ましくは1～30%である。

【0061】実際には、コポリマーは、組成物の全重量に対して60%まで（活性物質又は乾燥物質基準）で、好ましくは12重量%から60重量%とすることができる。

【0062】顔料／コポリマーの重量比は、好ましくは<1、更には ≤ 0.9 である。この比率は、好ましくは ≤ 0.5 である。この比率は、0.015まで下げることができる。0.5を越えると皮膜はわずかに移り、1を越えると皮膜はかなりの程度移る。

【0063】本発明の組成物は、有利には、組成物の全重量に対して少なくとも30重量%の脂肪相を含有し得る。顆粒状及び微粉状のテクスチャーは30%以下で得られる。非顆粒状で均質な外観のクリーム、ゲル又は棒状体を得ようとする場合は、あまり望ましいものではない。

【0064】顔料は、白色又は有色で、無機物及び／又は有機物であってよい。無機顔料としては、界面が処理されていてもよい、二酸化チタン、酸化ジルコニウム又は酸化セリウム、及び酸化鉄又は酸化クロム、マンガンバイオレット、ウルトラマリンブルー、クロム水和物（chromium hydrate）及びフェリックブルーを挙げることができる。有機顔料としては、カーボンブラック、D & C型の顔料、アルミニウム、カルシウム、ストロンチウム又はバリウム又はコチニールカルミンをベースとしたレーキ類を挙げることができる。

【0065】真珠光沢剤は、白色の真珠光沢顔料、例えば、酸化チタン又はオキシ塩化ビスマスで被覆されたマイカ、有色の真珠光沢顔料、例えば、酸化鉄を有する酸化チタン被覆雲母、特にフェリックブルー又は酸化クロムを有する酸化チタン被覆雲母、上述した種類の有機顔料を有する酸化チタン被覆雲母、及びオキシ塩化ビスマスをベースとした真珠光沢顔料から選択することができる。

【0066】フィラーは、無機又は有機で、ラメラ又は球状のものであってよい。このようなものとしては、タルク、マイカ、シリカ、カオリン、ナイロンパウダー

〔アトケム社（Atochem）のオルガソール（Orgasol）〕、ポリ- β -アラニンパウダー及びポリエチレンパウダー、テフロン、ラウロイルリシン、デンプン、窒化ホウ素、ポリテトラフルオロエチレンポリマーのパウダー、中空ミクロスフェア、例えばエクспанセル〔ノーベルインダストリー社（Nobel Industrie）〕、ポリトラップ（polytrap）〔ダウ・コーニング社（Dow Corning）〕及びシリコーン樹脂の微小ビーズ（microbeads）〔例えば、東芝のトスパール（Tospearls）〕、上述した炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、水和炭酸マグネシウム、ハイドロキシアパタイト、中空のシリカミクロスフェア〔マプレコス社（Maprecos）のシリカビーズ〕、ガラスのマイクロカプセル、セラミックのマイクロカプセル又は8～22の炭素原子、好ましくは12～18の炭素原子を含有する有機カルボン酸から誘導された金属石鹸、例えば、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸リチウム、ラウリン酸亜鉛又はミリスチン酸マグネシウムを挙げることができる。

【0067】使用されるフィラー、特にポリマー性の有機フィラーは、架橋したものであってもそうでなくよく、粒子内に、組成物の適用後に放出される化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用活性成分を含有していてもよい。顔料及びフィラーは表面が被覆されたものであってもそうでなくともよく、特にシリコーン、アミノ酸、フッ化誘導体又は組成物における顔料の融和性及び分散性を促進させる任意の他の物質で表面処理されたものであってよい。

【0068】脂溶性染料は、例えば、スーダンレッド（Sudan red）、DC Red 17、DC Green6、 β -カロチン、大豆油、スーダンプラウン（Sudan brown）、DC Yellow 11、DC Violet 2、DC Orange 5又はキノリンイエローである。これらは、組成物の重量に対して0.01～20%、好ましくは0.1～6%である。

【0069】本発明の組成物のコポリマーにより、着色物質及び／又は活性成分を捕捉する網状構造を形成する皮膜を皮膚、唇及び／又は粘膜上に形成することができる。使用される安定化ポリマーの量に対して使用される着色物質の量に依存して、多かれ少なかれ光沢があり、多かれ少なかれ移りのない皮膜を得ることができる。

【0070】本発明の組成物に使用することができる化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用活性成分としては、化粧用油（cosmetic oil）、保湿剤、ビタミン類、必須脂肪酸、スフィンゴ脂質、サンスクリーン剤、酸化防止剤、抗さ瘡剤、抗炎症剤、サンタン剤（UV線のない場合）、色素脱失剤、マット化剤（matifying agents）及びそれらの混合物を挙げることができる。保湿剤としては、グリセロール及びポリ（メタクリル酸グリセ

リル)、ヒアルロン酸ナトリウム及び糖類又はポリオールのエステル類を挙げることができる。これらの活性成分は、当業者にとって通常の量、特に組成物の全重量に対して0.001~20重量%の濃度で使用される。

【0071】更に本発明の組成物は、考慮される用途の種類により、考慮される分野において従来より使用されている構成成分を、所望の製薬的投与形態に適切な量で含有し得る。

【0072】特に、ポリマーが安定している液状脂肪相に加えて、植物、動物、鉱物又は合成由来の、また場合によってはシリコン由来のロウ、油、ガム及び/又はペースト状脂肪物質、及びそれらの混合物から選択される、付加的な脂肪相を更に含有してもよい。

【0073】本発明の組成物中に存在し得る、室温で固体状のロウとしては、特に45℃を越える融点を有するロウ、例えば炭化水素含有ロウ、例えば、ミツロウ、カルナウバロウ、キャンデリラロウ、オーリクリーロウ、モクロウ、コルク繊維ロウ、サトウキビロウ、パラフィン、褐炭ロウ、マイクロクリスタリンワックス、ラノリンロウ、モンタンロウ、オゾケライト、ポリエチレンロウ、フィッシャー・トロプシュ合成法により得られるロウ、水素化された油、又は25℃で固体のグリセリド及び脂肪エステルを挙げることができる。また、シリコンロウを使用することもでき、このようなものとしては、アルキルポリメチルシロキサン、アルコキシポリメチルシロキサン、及び/又はポリメチルシロキサンエステルを挙げることができる。ロウは、コロイド状のロウ粒子の安定した分散物の形態で提供することができ、公知の方法、例えば、アカデミックプレス社から出版されている、L. M. Princeの「マイクロエマルジョンの理論と実際」(1977年、21-32頁)に記載されている方法により調製することができる。室温で液状のロウとしては、ホホバ油を挙げることができる。ロウは、組成物の重量に対して0~50重量%、好ましくは10~30重量%の割合で存在する。

【0074】また、組成物は、このような組成物に従来より使用されている任意の添加剤、例えば、増粘剤、香料、防腐剤、界面活性剤又は脂溶性ポリマー、例えばポリアルキレン、特にポリブテン、ポリアクリル及び脂肪相と融和性のあるシリコンポリマー、並びにポリビニルピロリドン誘導体を更に含有してもよい。もちろん、当業者であれば、考慮される添加により、本発明の組成物の有利な特性が、全く又は実質的に悪影響を受けないように留意して、添加可能な化合物及び/又はそれらの量を選択するであろう。

【0075】増粘剤としては、ベントナイト、処理されたシリカ、脂溶性のアルキル化グアガム、組成物に溶解する少なくとも1つのブロック及び1つの不溶性ブロックを有するブロック又はグラフト化ポリマー、例えばポリスチレン/コポリ(エチレン-プロピレン)又はポリ

スチレン/コポリ(エチレン-ブチレン)のビー又はトリブロックコポリマー、ポリ(ビニルピロリドン-ヘキサジエン)、シリコンガム及びKSGシリコンを挙げることができる。

【0076】シリコンガムは、一般的に200000~1000000の数平均モル質量を有する。単独で、又は溶媒に混合された形態で使用可能なシリコンガムの例として、以下のコポリマー:

- ポリ[(ジメチルシロキサン)/(メチルビニルシロキサン)]
- ポリ[(ジメチルシロキサン)/(ジフェニルシロキサン)]
- ポリ[(ジメチルシロキサン)/(フェニルメチルシロキサン)]
- ポリ[(ジメチルシロキサン)/(ジフェニルシロキサン)/(メチルビニルシロキサン)];

及び以下の混合物:

- 環状のポリジメチルシロキサン、及び鎖の末端がヒドロキシル化されたポリジメチルシロキサンから形成される混合物;
 - 環状シリコン及びポリジメチルシロキサンから形成される混合物;
 - 異なる粘度を有する2つのポリジメチルシロキサンの混合物;
- を挙げることができる。

【0077】本発明の組成物は、本発明の結晶化がコントロールされたオレフィンコポリマー以外の、脂肪相に分散可能なコポリマー及びホモポリマー、及び/又は脂溶性のホモポリマー及びコポリマーを更に含有してもよい。これらのホモポリマー及びコポリマーとしては、ポリオレフィン、例えばポリエチレン、ポリブテン及びポリデセン;(メタ)アクリル酸アミド及び/又はエステルのコポリマー;ビニルエステルのコポリマー、例えばエチレン/酢酸ビニルのコポリマー;シリコン基を担持する(メタ)アクリル酸又はビニルのホモポリマー又はコポリマー、例えば(メタ)アクリル骨格にシリコンマクロマーがグラフトしたグラフト化コポリマー;

(メタ)アクリル骨格又はブロックと炭化水素含有グラフト又はブロックのコポリマー、例えばポリイソブチレン;ポリオルガノシロキサン骨格又はブロックと(メタ)アクリル及び/又はビニルグラフト又はブロックのブロック又はグラフト化コポリマー;又はフッ化又は過フッ化ホモポリマー又はコポリマー、例えば過フッ化ポリエーテル、例えば「フォンブリンズ(Fomblins)」(登録商標)の名称で販売されているもの、過フッ化(メタ)アクリル酸ホモ又はコポリマー、フッ化ビニルホモ又はコポリマー、フッ化オレフィンホモ又はコポリマー及びフッ化ポリ(ビニルエーテル)を挙げることができる。

【0078】本発明の特定の実施態様において、本発明

の組成物は当業者にとって通常の方法で調製することができる。それらは、成型製品の形態、例えば直接接触させて、又はスポンジで使用するこゝのできる皿状の形態、又は棒状の形態で提供することができる。特に、それらは、成型ファンデーション、成型フェイスパウダー、成型アイシャドウ、口紅、唇の手入れ用バーム又はベース、又は眼の下ゝの環状部に抗する製品としての適用が見いだされる。また、それらは、25℃での粘度が1〜40 Pa・sのオーダーである柔軟なペースト状の形態、又は多かれ少なかれ流動的なクリーム又はゲルの形態で提供することもできる。更に、それらは、ファンデーション又は口紅、抗日光用製品、又は皮膚を着色するための製品を構成することもできる。

【0079】好ましくは、本発明の組成物は、コーンプレート幾何特性（コーン特性、直径20mm、角度1度、間隔40μm）を持つストレス負荷レオメーターHAAKE・RS75により25℃で測定して動粘度はμ≧5 Pa・sである。

【0080】本発明の組成物は有利には無水物であり、組成物の全重量に対して5重量%未満の水分を含有し得る。更に、それらは、特に、油性ゲル、油性の液体又は油、ペースト又は棒状体の形態で提供することもできる。これらの製薬的投与形態は、考慮される分野における通常の方法で調製される。

【0081】また、本発明の組成物は、有利には、油中水型、水中油型又はロウ中水型のエマルションの形態で

処方物の組成：

— ポリマー	14 g
— ラノリン	7 g
— カプリン酸／カプリル酸トリグリセリド	13 g
— ゴマ油	22 g
— シクロペンタジメチルシロキサン	32 g
— 顔料	12 g

【0084】揮発性シリコーンを除いた全ての成分を105℃で加熱しつつ、加温状態下で混合し、ポリマーを溶解させた。顔料をホモジナイズし、挽いた後、揮発性シリコーンを90℃で添加し、混合物を適切な鋳型に入れて成型した。唇への適用後に心地よい被膜を付着させる良好なレオロジー特性を有する棒状体を得られた。

処方物の組成：

— エンゲージ（登録商標）8400ポリマー	18 g
— 顔料（酸化鉄）	6 g
— イソドデカン	50 g
— パーリーム油	26 g

【0086】全ての成分を加温状態下で混合し、混合物を適切な鋳型に入れて成型した。唇への適用後に心地よ

提供され、該組成物において本発明のオレフィンコポリマーは、これらのエマルションに通常存在するロウの全て又は一部に代えて使用される。特に、ロウは本発明の少なくとも1種のオレフィンコポリマーと揮発性であってもなくてもよい少なくとも1種の油からなる。組成物はイオン性及び／又は非イオン性の脂質を含有する小胞分散液の形態であってもよい。

【0082】これら局所適用用の組成物は、特に、顔、首、手又はボディの保護、トリートメント又は手入れ用の、化粧品用、皮膚科学的、衛生用又は製薬用組成物（例えば、無水の手入れ用クリーム、抗日光用オイル又はボディゲル）、メイクアップ用組成物（例えば、メイクアップゲル）、又は人工的に日焼けした状態とする組成物を構成することもできる。

【0083】

【実施例】発明を限定するものではない以下の実施例により、本発明を例証する。

実施例1：棒状口紅の調製

ポリマーの選定：J・Minickの論文（J. of Appl. Polym. Sci. 第58巻、1371-84頁、1995）に記載の特徴を有する、エンゲージ（登録商標）CGCT8817-Oの名称でダウ・ケミカル社から販売されており、メタロセン合成法により調製された、4.7モル%のオクテンを含有するコポリマー（エチレン／1-オクテン）（結晶度：25%）。

【0085】実施例2：口紅の調製

ポリマーの選定

エンゲージ（登録商標）8400の名称でダウ・ケミカル社から販売されており、メタロセン合成法により調製されたコポリマー（エチレン／1-オクテン）（結晶度：10-35%）。

い被膜を付着させる良好なレオロジー特性を有する棒状体を得られた。

【手続補正書】

【提出日】平成11年5月27日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 液状脂肪相と該液状脂肪相に溶解又は分散可能な少なくとも1種のコポリマーを有効量含有してなるケラチン物質に適用される組成物において、該コポリマーが50%以下、好ましくは5～40%、更に好ましくは10～35%の結晶度を有する結晶性オレフィンコポリマーから選択されることを特徴とする組成物。

【請求項2】 上記コポリマーが組成物の全重量に対して少なくとも2重量%であることを特徴とする請求項1に記載の組成物。

【請求項3】 上記コポリマーが、 $M_w \geq 30000$ 、好ましくは $M_w \geq 40000$ となる重量平均分子量 M_w を有していることを特徴とする請求項1又は2に記載の組成物。

【請求項4】 上記コポリマーが、 $M_w/M_n \leq 3$ 、5、好ましくは $M_w/M_n \leq 2.5$ （ここで M_n は数平均分子量）の多分散指数 M_w/M_n を有することを特徴とする請求項3に記載の組成物。

【請求項5】 上記コポリマーが室温で固体であることを特徴とする請求項1ないし4の何れか1項に記載の組成物。

【請求項6】 化粧品用、皮膚用、衛生用又は製薬用液状脂肪相と少なくとも1種の固体状の口吻とを含有する成型製品の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし5の何れか1項に記載の組成物。

【請求項7】 上記コポリマーが皮膚形成可能なものであることを特徴とする請求項1ないし6の何れか1項に記載の組成物。

【請求項8】 液状脂肪相が揮発性であることを特徴とする請求項7に記載の組成物。

【請求項9】 化粧品用、皮膚用、衛生用又は製薬用活性成分及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の活性成分を更に含有していることを特徴とする請求項8に記載の組成物。

【請求項10】 少なくとも1種の着色物質を更に含有していることを特徴とする請求項1ないし9の何れか1項に記載の組成物。

【請求項11】 オレフィンコポリマーが：

(A) α -オレフィンコポリマー、オレフィンとシクロオレフィンのコポリマー、ジエン等のエチレン性結合を有するモノマーと α -オレフィンのコポリマー；

(B) タクチックとアタクチック単位を有する α -オレフィンコポリマー；から選択されることを特徴とする請

求項1ないし10の何れか1項に記載の組成物。

【請求項12】 α -オレフィンコポリマーが、エチレン又はプロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのバイポリマー、及びエチレン、プロピレンと C_4-C_{16} 、好ましくは C_4-C_{12} α -オレフィンのターポリマーから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項13】 C_4-C_{16} α -オレフィンが、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、3,3,5-トリメチル-1-ヘキセン、3-メチル-1-ペンテン及び4-メチル-1-ペンテンから選択されることを特徴とする請求項12に記載の組成物。

【請求項14】 α -オレフィンのモル%が40%以下、好ましくは30%以下であることを特徴とする請求項12又は13に記載の組成物。

【請求項15】 オレフィンコポリマーが、エチレン又はプロピレンと、シクロブテン、シクロヘキセン、シクロオクタジエン、ノルボルネン、ジメタノオクタヒドロナフタレン(DMON)、エチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン及び4-ビニルシクロヘキセンから選ばれたシクロオレフィンとのバイポリマー、及びエチレンとプロピレンと前記シクロオレフィンのターポリマーから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項16】 オレフィンとシクロオレフィンのコポリマーが20モル%未満のシクロオレフィンを含有していることを特徴とする請求項15に記載の組成物。

【請求項17】 α -オレフィンとシクロオレフィンのコポリマーが、18モル%未満のノルボルネンを含有するエチレン/ノルボルネンコポリマーであることを特徴とする請求項16に記載の組成物。

【請求項18】 ジエン等のエチレン性結合を有するモノマーと α -オレフィンのコポリマーが、エチレン/ブタジエン及びエチレン/イソプレンのバイポリマーから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項19】 バイポリマーが20モル%未満のエチレン性結合を有するモノマーを含有していることを特徴とする請求項18に記載の組成物。

【請求項20】 タクチック及びアタクチック単位を有する α -オレフィンコポリマーが、アイソタクチック及びアタクチック単位を有するポリプロピレンとシンジオタクチック及びアタクチック単位を有するポリプロピレンから選択されることを特徴とする請求項11に記載の組成物。

【請求項21】 タクチック単位のレベルが30モル%未満であることを特徴とする請求項20に記載の組成

物。

【請求項22】 オレフィンコポリマーがメタロセン合成法により得られるものであることを特徴とする請求項1ないし21の何れか1項に記載の組成物。

【請求項23】 液状脂肪相が、鉱物、動物、植物又は合成由来の炭素含有油、炭化水素含有油、フッ化油及び／又はシリコン油の、単独物又は混合物からなることを特徴とする請求項1ないし22の何れか1項に記載の組成物。

【請求項24】 液状脂肪相が、流動パラフィン又は流動ワセリン、ミンク油、タートル油、大豆油、ペルヒドロスクワレン、スイートアルモンド油、カロフィラム油、パーム油、パーリウム油、グレープシード油、ゴマ油、コーン油、菜種油、ヒマワリ油、綿実油、アブリコット油、ヒマシ油、アボカド油、ホホバ油、オリーブ油又は穀類胚芽油；ラノリン酸、オレイン酸、ラウリン酸又はステアリン酸のエステル；ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、ラウリン酸ヘキシル、アジピン酸ジイソプロピル、イソノナン酸イソノニル、2-エチルヘキシルパルミタート、2-ヘキシルデシルラウラート、2-オクチルデシルパルミタート、2-オクチルドデシルミルスタート又はラクタート、ジ(2-エチルヘキシル)スクシナート、リンゴ酸ジイソステアリル、トリイソステアリン酸グリセリル又はトリイソステアリン酸ジグリセリル等の脂肪エステル；ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸又はイソステアリン酸等の少なくとも12の炭素原子を有する高級脂肪酸；ステアリルアルコール又はオレイルアルコール、リノレイル又はリノレニルアルコール、イソステアリルアルコール又はオクチルドデカノール等の少なくとも12の炭素原子を有する高級脂肪アルコール；PDMS類等のシリコン油で、フェニルトリメチコン、フェニルトリメチルシロキシジフェニルシロキサン、ジフェニルメチルジメチルトリシロキサン、ジフェニルジメチコン、フェニルジメチコン又はポリメチルフェニルシロキサン等のフェニル化されていてもよいもの、又は脂肪族及び／又は芳香族基、又はヒドロキシル、チオール及び／又はアミン基等の官能基で置換されていてもよいもの；脂肪酸、脂肪アルコール、又はポリオキシアルキレンで変性したポリシロキサン、フッ化シリコン又は過フッ化油；オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ヘキサデカメチルシクロヘキサシロキサン、ヘプタメチルヘキシルトリシロキサン、ヘプタメチルオクチルトリシロキサン又は C_8-C_{16} イソパラフィン、特にイソドデカン及びイソヘキサデカン等の揮発性油から選択されることを特徴とする請求項1ないし23の何れか1項に記載の組成物。

【請求項25】 液状脂肪相が、

— ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータが17 (MPa)^{1/2}未満の非水性液化化合物、

— 又は、ハンセン溶解空間の包括的溶解パラメータが20 (MPa)^{1/2}以下のモノアルコール、

— 又はそれらの混合物、からなる群から選択されることを特徴とする請求項1ないし24の何れか1項に記載の組成物。

【請求項26】 脂肪相が室温で揮発する少なくとも1種の油を含有することを特徴とする請求項1ないし25の何れか1項に記載の組成物。

【請求項27】 植物、動物、鉱物、合成又はシリコン由来のロウ、ガム及び／又はペースト状脂肪物質、及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の付加的な脂肪相を更に含有していることを特徴とする請求項1ないし26の何れか1項に記載の組成物。

【請求項28】 フィラー、顔料、真珠光沢剤及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の微粉状化合物が含まれることを特徴とする請求項1ないし27の何れか1項に記載の組成物。

【請求項29】 微粉状化合物とコポリマーとが、1未満の顔料／コポリマーの割合で存在していることを特徴とする請求項28に記載の組成物。

【請求項30】 微粉状化合物が、組成物の全重量に対して0.1～98%であることを特徴とする請求項28又は29に記載の組成物。

【請求項31】 微粉状化合物が、組成物の全重量に対して1～30%であることを特徴とする請求項29に記載の組成物。

【請求項32】 オレフィンコポリマーが、組成物の全重量に対して60% (乾燥物質基準) までであることを特徴とする請求項1ないし31の何れか1項に記載の組成物。

【請求項33】 オレフィンコポリマーが、組成物の全重量に対して12～60% (乾燥物質基準) であることを特徴とする請求項1ないし32の何れか1項に記載の組成物。

【請求項34】 液状脂肪相が、2～7のケイ素原子を有し、1～10の炭素原子を有するアルキル基を有していてもよい直鎖状又は環状のシリコン、及び C_8-C_{16} イソパラフィン、及びそれらの混合物から選択される少なくとも1種の油を含有していることを特徴とする請求項1ないし33の何れか1項に記載の組成物。

【請求項35】 棒状形態；25℃で1～40 Pa・s オーダーの動粘度を有する柔軟なペースト状の形態；皿状形態；油性ゲル；油性の液体；又はイオン性又は非イオン性の脂質を含有する小胞分散液の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし34の何れか1項に記載の組成物。

【請求項36】 油中水型、水中油型又はロウ中水型のエマルションの形態で提供され、該ロウが50%以下の

結晶度を有する少なくとも1種の結晶性オレフィンコポリマーと少なくとも1種の油からなるものであってよいことを特徴とする請求項1ないし35の何れか1項に記載の組成物。

【請求項37】 無水の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし34の何れか1項に記載の組成物。

【請求項38】 皮膚及び／又は唇及び／又は睫毛のメイクアップ及び／又は手入れ用の製品の形態で提供され

ることを特徴とする請求項1ないし37の何れか1項に記載の組成物。

【請求項39】 成型ファンデーション、成型フェイスパウダー、成型アイシャドウ、口紅、唇の手入れ用バルム又はベース、又は眼の下の環状部に抗する製品、マスカラ又はボディのメイクアップ用の形態で提供されることを特徴とする請求項1ないし38の何れか1項に記載の組成物。